



①9 **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 199 09 930 A 1**

⑤1 Int. Cl.⁷:
B 01 D 69/02
B 01 D 67/00
B 01 D 61/44
H 01 M 8/02

②1 Aktenzeichen: 199 09 930.8
②2 Anmeldetag: 6. 3. 1999
④3 Offenlegungstag: 7. 9. 2000

DE 199 09 930 A 1

⑦1 Anmelder:
Fraunhofer-Gesellschaft zur Förderung der
angewandten Forschung e.V., 80636 München, DE

⑦4 Vertreter:
Gleiss & Große, Patentanwaltskanzlei, 70469
Stuttgart

⑦2 Erfinder:
Höfler, Thomas, Dipl.-Chem. Dr.rer.nat., 70563
Stuttgart, DE; Stroh, Norbert, Dipl.-Ing., 71106
Magstadt, DE

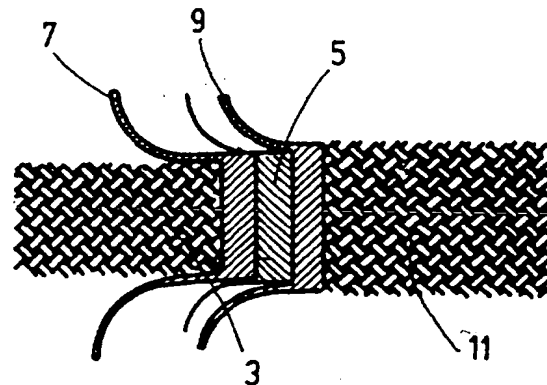
⑤6 Entgegenhaltungen:
US 60 01 500
US 54 58 989
WO 98 16 963
WO 97 47 052

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Herstellung von tubulären PEM-Brennstoffzellen und Ionentauschermembranen

⑤7 Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verbundsystem
aus einer Elektrode und einer Membran, welches als
Brennstoffzellenelement oder Ionentauschermembran
Einsatz finden kann.



BEST AVAILABLE COPY

DE 199 09 930 A 1

weise 10^2 bis 10^3 . Zur Verbesserung der elektrischen Leitfähigkeit können einzelne Bündel des Geflechts durch Metalldrahtbündel oder Metalldrähte ersetzt werden. Erfindungsgemäß ist es auch möglich, einzelne Kohlefasern eines Bündels durch Metalldrähte zu ersetzen.

Der Durchmesser der Kohlefasern beträgt in besonders bevorzugter Ausführungsform 7 bis 12 μm .

In bevorzugter Weise beträgt der Innendurchmesser des tubulären Verbundes 0,2 bis 2 mm.

Die Erfindung sieht in einer weiteren bevorzugten Ausführungsform also auch vor, daß das Geflecht neben den Kohlefaserbündeln zusätzlich Metalldrähte aufweist. Selbstverständlich kann auch vorgesehen sein, daß das Geflecht überhaupt keine Kohlefaserbündel, sondern ausschließlich ein Metalldrahtgeflecht oder ein Geflecht aus Bündeln einer Anzahl von Metalldrähten darstellt.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung sind die Metalldrähte Edelmetalldrähte oder Drähte aus korrosionsfesten Metallen oder Legierungen, zum Beispiel Nickel-, Platin-, Palladium-, Gold- oder Silberdrähte oder Drähte aus rostfreiem Stahl. Der Durchmesser dieser Drähte beträgt in bevorzugter Ausführungsform von 10 bis 150 μm . Selbstverständlich sind jedoch auch andere Metalle oder Metallegierungen erfindungsgemäß einsetzbar. Die Erfindung umfaßt auch den Einsatz von nur unter bestimmten Bedingungen elektrisch leitenden Materialien, wie Supra- oder Halbleitern, in dem oder als Geflecht des Elektronenleitenden Materials.

Im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung wird unter dem Ionenleitenden Material ein Medium verstanden, das in der Lage ist, Ionen zu leiten, also ein elektrolytisches Material. Das erfindungsgemäß einsetzbare Ionenleitende Material kann fest, zum Beispiel ein Metalloxid, eine Salzsäuremelze etc., oder flüssig, zum Beispiel eine wäßrige Salzlösung, sein. Das Ionenleitende Material ist vorzugsweise als Membran, insbesondere technische, also synthetische Membran, ausgeführt, wobei, falls notwendig, das Ionenleitende Material vernetzende Zusätze aufweist, und aus organischen, zum Beispiel Polysulfonen, Polyetherketonen, Polyetheretherketonen oder anderen aromatischen Polyarylethern oder anorganischen Materialien, zum Beispiel Aluminiumoxid, Zirkoniumoxid, Kohlenstoffasern bestehen kann beziehungsweise diese unter gegebenenfalls erforderlichlichem Einsatz von Ionenleitern enthält. Die Membran weist in besonders bevorzugter Ausführungsform eine Dicke von 10 bis 150 μm auf. Erfindungsgemäß kann auch der Einsatz von Ampholyten oder Polyelektrolyten vorgesehen sein. Besonders bevorzugt umfaßt die Erfindung den Einsatz eines Polymers, insbesondere des Elektrolyten NAFION® oder sulfonierte aromatische Polyetheretherketone oder anderer anionischer Polyarylether. Im Fall des Einsatzes eines Festelektrolyten muß für die Erzielung einer geeigneten Leitfähigkeit ein entsprechend hoher Wassergehalt vorgesehen sein. Die erfindungsgemäß besonders bevorzugte Verwendung einer Membran als Ionenleitendem Material kann auch in Form von funktionell und/oder strukturell unterschiedliche Bereiche aufweisenden Membranen, zum Beispiel bipolaren Membranen erfolgen.

In einer bevorzugten Ausführungsform betrifft die Erfindung einen tubulären Verbund aus einem Geflecht aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials und einer darüber angeordneten Schicht einen Ionenleitfähigen Materials, wobei der tubuläre Verbund als Brennstoffzellenelement ausgeführt ist und sowohl zwischen dem Geflecht aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials und der Schicht eines Ionenleitfähigen Materials als auch über der Schicht des Ionenleitenden Materials jeweils mindestens eine Katalysatorschicht angeord-

net ist und wobei die nach außen orientierte, also obere, Katalysatorschicht von einem weiteren Geflecht eines Elektronenleitenden Materials überdeckt ist. Die Katalysatorschicht dringt während des Herstellprozesses auch in das Geflecht und seine Zwischenräume ein, so daß sich ein inniger Verbund zwischen Geflecht und Katalysatorschicht ohne scharfe räumliche Trennung bildet. Ebenso kann das Geflecht sich zumindest teilweise in eine darunter liegende Katalysatorschicht eindrücken.

Ein derartiger tubulärer Verbund kann selbstverständlich nicht nur als Brennstoffzellenelement, sondern auch als Sauerstoff-, Wasserstoff-, Kohlenmonoxid- oder Methan-Sensor eingesetzt werden.

Die mindestens eine Katalysatorschicht dient der Umwandlung der als Brennstoff oder zu messendem Stoff, zum Beispiel Wasserstoff, Sauerstoff, Methan oder Kohlenstoffmonoxid zugeführten Substanz in ein Ion. Auf diese Schicht oder diese Schichten kann erfindungsgemäß auch verzichtet werden, beispielsweise wenn katalytisch aktive Metalldrähte oder mit einer katalytisch aktiven Substanz beschichtete Kohlefasern oder Metalldrähte im Geflecht vorgesehen sind. Als derartige katalytisch aktive Substanz können ein oder mehrere Elemente der VIII. Nebengruppe des PSE, zum Beispiel Platin, Palladium, Ruthenium, Rhodium, Iridium und Nickel oder Legierungen daraus eingesetzt werden, gegebenenfalls zusammen mit Kohlenstoff, zum Beispiel in Form von Graphitpulver oder Aktivkohle. Erfindungsgemäß kann auch vorgesehen sein, mehrere unterschiedliche Katalysatoren oder Katalysatorschichten in unmittelbarer räumlicher Nähe oder Einheit auszuführen.

Die Dicke einer Katalysatorschicht beträgt vorzugsweise von 1 bis 70 μm .

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform betrifft die Erfindung ein vorstehend erläutertes PEM-Brennstoffzellenelement, wobei die Katalysatorschicht ein Platin-Kohlenstoff- oder Palladium-Kohlenstoff-Gemisch enthält oder aus diesen besteht.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform weist die Katalysatorschicht Hydrophobierungs- und/oder Protonenleitermaterialzusätze auf, zum Beispiel Pulver aus aromatischem Polyetheretherketon oder PTFE-Pulver.

Ein derartiges PEM-Brennstoffzellenelement kann erfindungsgemäß einen Durchmesser von 200 bis 2000 μm aufweisen.

Eine Vielzahl erfindungsgemäßer Brennstoffzellenelemente können mit ihren Längsachsen parallel zueinander zu einem Modul zusammengefaßt werden. Sie erlauben dann eine Strömungsführung der Edukte, zum Beispiel Wasserstoff und Sauerstoff, in Form eines Kreuzstromes, wodurch Stofftransportwiderstände minimiert und Triebkräfte großgehalten werden, was bessere Wirkungsgrade zur Folge hat. Durch die hohe Packungsdichte kann gleichzeitig eine hohe Leistungsdichte erreicht werden. Zur Erzielung des geforderten Stromes und der geforderten Spannung können die Brennstoffzellenelemente parallel oder in Serie verschaltet werden.

Die Erfindung ermöglicht also die Zufuhr von zum Beispiel molekularem Wasserstoff in und durch den Hohlraum des tubulären Verbundes. Der molekulare Wasserstoff verläßt den Hohlraum des tubulären Verbundes, dringt durch das als Anode ausgeführte Geflecht aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials hindurch, welches gleichsam als Poren-aufweisende Schicht wirkt, und wird dabei ebenso wie in der darüber angeordneten Katalysatorschicht zu einzelnen Wasserstoffatomen und letztendlich Protonen umgewandelt. Die Protonen wandern durch die über der Katalysatorschicht angeordnete Ionenleitende Schicht, zum Beispiel die Membran, in die Rich-

ung des als Kathode ausgeführten Geflechts eines Elektronenleitenden Materials. Zum Beispiel Sauerstoff oder ein sauerstoffhaltiges Gasgemisch wie Luft, welches sich außerhalb des tubulären Verbundes befindet und beispielsweise senkrecht zu dem Wasserstoffstrom einem Modul zugeführt wird, kommt mit dem außen liegenden Geflecht des Elektronenleitenden Materials in Kontakt. Dort und an der nach innen unmittelbar folgenden Katalysatorschicht wird der molekulare Sauerstoff zu Sauerstoffatomen und Sauerstoffionen umgewandelt. Die sich im Bereich der innen liegenden Membran treffenden Protonen und Sauerstoffionen bilden Wasser, welches als Wasserdampf einerseits durch die Membran ins Lumen und andererseits durch die Katalysatorschicht und die Kathode in den Außenraum abgeführt wird. Gleichzeitig wird Elektrizität erzeugt.

Die Erfindung sieht selbstverständlich auch vor, daß die Katalysatorschicht in das Geflecht des Elektronenleitenden Materials integriert ist, das heißt, daß die Katalysatorschicht die einzelnen Bündel, Fasern und/oder Drähte des Geflechts aus dem Elektronenleitenden Material teilweise oder vollständig bedeckt und/oder zwischen diesen Elementen angeordnet ist. Eine distinkte räumliche Trennung von Katalysatorschicht und Anode oder Kathode muß daher erfindungsgemäß nicht vorliegen.

Die Erfindung betrifft auch einen tubulären Verbund aus einem Geflecht aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials und einer darüber angeordneten Schicht eines Ionenleitfähigen Materials, wobei der tubuläre Verbund als Ionentauschermembran ausgeführt ist und vorzugsweise zwischen dem Geflecht des Elektronenleitenden Materials und der Schicht eines Ionenleitenden Materials ein Spacer angeordnet ist, der der Vergrößerung des durchströmbar Volumens dient. Erfindungsgemäß kann vorgesehen sein, den Spacer als Geflecht aus Bündeln und/oder Fasern eines Ionenleitenden oder neutralen das heißt elektrisch isolierenden Materials auszuführen. Der Spacer kann zum Beispiel aus Polypropylen, Polyethylen, Ionentauschermaterial oder ähnlichem bestehen oder dieses enthalten. In bevorzugter Weise ist das als Spacer ausgeführte Geflecht gröber, das heißt weist eine geringere Flechtdichte, zum Beispiel von 1 bis 20% Deckung, und geringere Steigungswinkel, zum Beispiel von 10° bis 45° der Ionenleitenden oder neutralen Fasern oder Bündel auf.

Das Ionenleitende Material kann als Kationen-Austauscher oder Anionen-Austauscher ausgeführt sein. Selbstverständlich ist es auch möglich, mehrere Schichten eines oder verschiedener Ionenleitender Materialien übereinander anzuordnen. Die Erfindung betrifft auch den Einsatz einer bipolaren Membran als Schicht eines Ionenleitenden Materials.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform kann eine vorgenannte Ionentauschermembran vorgesehen sein, wobei diese über der Schicht eines Ionenleitenden Materials einen weiteren Spacer sowie ein weiteres Geflecht eines Elektronenleitenden Materials aufweist. Diese Schichtenfolge aus Spacer und Elektronenleitendem Material kann als Gegenelektrode dienen. Auf die letztgenannte Anordnung aus Spacer und Elektronenleitendem Material als Gegenelektrode kann dann verzichtet werden, wenn die Ionentauschermembranen in einem Modul mit Sammelelektrode zusammengefaßt sind.

Die Erfindung sieht also auch vor, daß eine erfindungsgemäße Ionentauschermembran zusammen mit einer Vielzahl weiterer derartiger Ionentauschermembranen zu einem Modul zusammengefaßt sind. Ein derartiges Modul kann in bevorzugter Weise einen Rahmen sowie eine die mit ihren Längsachsen parallel zueinander angeordneten Ionentauschermembranen fixierende Matrix aufweisen. Ein derarti-

ger Aufbau kann auch für den modulartigen Aufbau einer erfindungsgemäßen Brennstoffzelle vorgesehen sein.

Der Rahmen ist vorzugsweise aus Kunststoff oder korrosionsbeständigem Metall hergestellt. Erfindungsgemäß ist bevorzugt, die Matrix aus thermoplastischen oder duroplastischen Polymeren herzustellen.

Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung eines erfindungsgemäßen tubulären Verbundes, wobei sich das Verfahren durch seine kontinuierliche Durchführbarkeit auszeichnet. Gemäß des erfindungsgemäßen Verfahrens werden, beispielsweise mittels einer herkömmlichen Flechtmaschine, in einem ersten Verfahrensschritt Bündel aus Kohlefasern und/oder Metalldrähten eines Elektronenleitenden Materials zu einem Schlauch geflochten. Das Elektronenleitende Material der Erfindung, welches vorzugsweise als Geflecht aus Bündeln von Kohlefasern und/oder Metalldrähten ausgeführt ist, wird entsprechend des jeweiligen Einsatzzweckes des tubulären Verbundes so geflochten, daß die zu transportierenden Stoffe wie Wasserstoff, Sauerstoff, Ionen und Flüssigkeiten das Geflecht passieren können, das heißt das Geflecht weist Porosität auf.

Gleichzeitig ist das Geflecht so ausgeführt, daß es als Stützgewebe für den tubulären Schlauch dient und diesem die erforderliche Flexibilität und Festigkeit bei gleichzeitig hoher Korrosionsbeständigkeit verleiht. Die Flechtdichte und der Steigungswinkel der einzelnen geflochtenen Bündel werden dem erwünschten Durchmesser des Schlauchs angepaßt. Sofern der Schlauch im wesentlichen aus Kohlefaserbündeln hergestellt werden soll, kann zur Verbesserung der elektrischen Leitfähigkeit die Zugabe von Metalldrahtbündeln vorgesehen werden. Der geflochtene Schlauch wird anschließend in einem zweiten Verfahrensschritt auf seiner Außenseite, also der dem Schlauchhohlraum abgewandten Seite, beispielsweise mittels Gießdüsen oder Spritzdüsen mit einer Ionenleitenden Schicht überzogen. Diese bildet vorzugsweise, nach gegebenenfalls erfolgender Trocknung, eine Ionenleitende, insbesondere Ionen-selektive Membran.

Zur Herstellung eines PEM-Brennstoffzellenelementes wird unmittelbar im Anschluß an das Flechten des Schlauches eine Katalysatorschicht, vorzugsweise inklusive Hydrophobisierungs- und Protonenleitermaterialzusätzen, auf das Geflecht aufgebracht, wobei dies in bevorzugter Weise in Form einer Paste über eine Durchlaufdüse geschieht. Das Aufbringen dieser Schicht eliminiert die Unebenheiten der Flechtungen, so daß eine glatte Oberfläche erzeugt wird, die eine hervorragende Voraussetzung für das Aufbringen der im Anschluß aufgetragenen Ionenleitenden Schicht darstellt. Das Aufbringen der Schicht eines Ionenleitenden Materials geschieht wie oben dargestellt, wobei Schichtstärken von 10 bis 150 µm bevorzugt werden. Nach einer gegebenenfalls notwendigen Trocknung wird wie vorstehend beschrieben eine weitere Katalysatorschicht aufgetragen. Anschließend wird um diesen Verbund ein außen liegendes Geflecht eines Elektronenleitenden Materials aus Bündeln und/oder Drähten geflochten. Die eingesetzten Geflechte weisen eine Flechtdichte von 50 bis 90% auf, bestehen aus Einzelsträngen mit 100 bis 1000 Filamenten, wobei jedes Filament einen Durchmesser zwischen 7 und 12 µm aufweisen kann und aus Kohlefasern und/oder Metalldrähten bestehen kann. Gegebenenfalls können auch Einzelstränge eingesetzt werden, die nicht aus Filamenten, sondern aus Voll- oder Hohlfasern bestehen. Der Flechtwinkel liegt zwischen 30° und 60°.

Zur Herstellung einer Ionentauschermembran wird, beispielsweise mittels einer herkömmlichen Flechtmaschine, ein Schlauch aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials, zum Beispiel Kohlefasern oder

Metalldrähte, geflochten. Dieses Geflecht weist eine gröbere Struktur als das Geflecht für ein Brennstoffzellenelement auf, wobei eine Flechtichte von 5 bis 60% und ein Flechtwinkel von 10 bis 45° bevorzugt werden. Die Geflechte bestehen aus Einzelsträngen mit 100 bis 1000 Filamenten, wobei jedes Filament einen Durchmesser zwischen 7 und 12 µm aufweisen kann und aus Kohlefasern und/oder Metalldrähten bestehen kann. Gegebenenfalls können auch Einzelstränge eingesetzt werden, die nicht aus Filamenten, sondern aus Voll- oder Hohlfasern bestehen.

Über dieses als Elektrode fungierende Geflecht wird zur Vergrößerung des durchströmbaren Volumens ein weiteres grobes Geflecht als Spacer aus elektrisch isolierendem oder Ionen-leitendem Material aufgebracht, wobei eine Flechtichte von 1 bis 20% Deckung und Steigungswinkel von 10° bis 45° vorgezogen werden. Die Durchmesser der Einzelfasern des Spacer-Geflechtes liegen vorzugsweise bei 50 bis 100 µm. Vor dem Auftragen der Ionen-leitenden Schicht wird als Grundlage für dieses Aufbringen eine temporär vorhandene Zwischenschicht aus einem leicht auswaschbaren Material, wie PVA (Polyvinylalkohol), aufgebracht.

Diese temporär vorhandene Zwischenschicht stellt die Basis für die vorzugsweise dünn-schichtige Ionentauschermembran dar, die durch Applizieren einer Lösung oder durch Sprühen aufgebracht wird. Sofern das Aufbringen einer Gegenelektrode notwendig ist, wird anschließend ein weiterer Spacer aus Ionen-leitendem oder neutralem das heißt elektrisch isolierendem Material um die Schicht des Ionen-leitenden Materials geflochten, gefolgt von dem Flechten eines Geflechtes aus einem Elektronen-leitenden Material, welches als Außenelektrode dient. Nach Fertigstellung des Verbundes wird die Zwischenschicht ausgewaschen.

Die Erfindung wird im folgenden anhand der Figuren und dazugehöriger Beispiele näher erläutert.

Die Figuren zeigen:

Fig. 1 einen Querschnitt durch einen als PEM-Brennstoffzellenelement ausgeführten tubulären Verbund,

Fig. 2 einen Querschnitt durch einen als Ionentauschermembran ohne Gegenelektrode ausgeführten tubulären Verbund,

Fig. 3 einen Querschnitt durch einen als Ionentauschermembran mit Gegenelektrode ausgeführten tubulären Verbund,

Fig. 4 einen Querschnitt durch ein Modul, umfassend eine Vielzahl tubulärer Verbünde,

Fig. 5 eine perspektivische Seitenansicht eines Moduls der vorliegenden Erfindung und

Fig. 6 eine teilweise geschnittene Draufsicht auf ein erfindungsgemäßes Brennstoffzellenelement.

Beispiel 1

Herstellung einer PEM-Brennstoffzelle

Mit einer Flechtmaschine wird die rohrförmige Innenelektrode (bestehend aus Kohlefasern und/oder Metalldrähten) erzeugt. Dieses tubuläre Geflecht läuft zur Zentrierung auf einem Dorn bis zur Auftragsdüse für die Katalysatorbeschichtung. Dabei bestimmt der Düsendurchmesser die Dicke der Katalysatorschicht. Nach einer kurzen Trocknenstrecke durch zum Beispiel Keramikheizkörper durchläuft das beschichtete Geflecht eine Ringspaltdüse, über die die ionenleitfähige Membran in Form einer Polymerlösung aufgetragen wird. Diesem Schritt schließt sich eine längere Trocknenstrecke zur Austreibung des Lösungsmittels an. Nachfolgend wird die zweite Katalysatorschicht mit einer Auftragsdüse aufgebracht. Danach wird die Außenelektrode

um die noch pastöse Katalysatorschicht geflochten. Die pastöse Konsistenz der Katalysatorschicht ermöglicht ein Eindringen der Geflechtstränge und damit einen innigen Verbund zwischen Katalysator und Elektrode. Zum Schluß durchläuft die Hohl-faser eine Endtrocknungsstrecke.

Beispiel 2

Einsatz einer PEM-Brennstoffzelle

Die PEM-Brennstoffzelle kann in Blockheizkraftwerken, Kraftfahrzeugen und privaten Haushalten zur Stromerzeugung eingesetzt werden.

Beispiel 3

Herstellung einer Ionentauschermembran

Mit einer Flechtmaschine wird die rohrförmige Innenelektrode (bestehend aus Kohlefasern und/oder Metalldrähten) erzeugt. Dieses tubuläre Geflecht läuft zur Zentrierung auf einem Dorn in eine zweite Flechtmaschine, auf der das gröbere Spacergeflecht aufgebracht wird. Es schließt sich das Aufbringen der auswaschbaren Zwischenschicht (zum Beispiel Polyvinylalkohol) an. Nach einer optionalen Trocknenstrecke, wobei die gezielte Schrumpfung zur Oberflächenvergrößerung genutzt werden kann, wird die Ionentauschermembran in Form einer Polymerlösung mit einer Düse aufgebracht und anschließend in einer Trocknungsstrecke das Lösungsmittel ausgetrieben. Soll die Ionentauschermembran eine bipolare Membran sein, folgt der ersten Membranbeschichtung eine weitere Beschichtung in Form einer Polymerlösung, wobei dieses Polymer die entgegengesetzte Ladung wie die erste Membranschicht aufweist. Das Lösungsmittel wird in einer zusätzlichen Trocknungsstrecke ausgetrieben.

Im nächsten Verfahrensschritt wird das grobe Spacergeflecht und die Außenelektrode in Form von Kohlefasern und/oder Metalldrähten um die Hohl-faser geflochten. Wird die tubuläre Ionentauschermembran in einem Modul mit Sammelelektrode eingesetzt, entfallen die beiden letzten Flechtschritte. Die lösliche Zwischenschicht im Späcer zwischen Innenelektrode und Ionentauschermembran wird vor der Modulherstellung oder vor der Inbetriebnahme der tubulären Ionentauschermembran herausgewaschen.

Beispiel 4

Einsatz einer Ionentauschermembran

Die Ionentauschermembran kann zum Beispiel zur Entsalzung von Prozeß- und Abwässern eingesetzt werden. Beim Einsatz von bipolaren Ionentauschermembranen ist auch die Erzeugung von Laugen und Säuren aus den entsprechenden Salzen möglich, beispielsweise die Gewinnung von Milchsäuren und Calciumhydroxid aus Lactat.

Patentansprüche

1. Tubulärer Verbund (1) aus einem Geflecht (3) aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronen-leitenden Materials und einer darüber angeordneten Schicht (5) eines Ionen-leitenden Materials.
2. Tubulärer Verbund nach Anspruch 1, wobei der tubuläre Verbund (1) als Brennstoffzellenelement ausgeführt ist und sowohl zwischen dem Geflecht (3) aus Bündeln oder Drähten eines Elektronen-leitenden Materials und der Schicht (5) eines Ionen-leitenden Mate-

- rials als auch über der Schicht (5) des Ionenleitenden Materials jeweils mindestens eine Katalysatorschicht (7, 9) angeordnet ist und wobei die nach außen orientierte Katalysatorschicht (9) von einem weiteren Geflecht (11) aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials überdeckt ist.
3. Tubulärer Verbund nach Anspruch 2, wobei die jeweils mindestens eine Katalysatorschicht (7, 9) ein oder mehrere Elemente der VIII. Nebengruppe des PSE, gegebenenfalls zusammen mit Aktivkohle oder Graphitpulver enthält.
4. Tubulärer Verbund nach einem der Ansprüche 2 oder 3, wobei die mindestens eine Katalysatorschicht (7, 9) Hydrophobierungszusätze und/oder Protonenleitmaterialzusätze umfaßt.
5. Tubulärer Verbund nach Anspruch 1, wobei der tubuläre Verbund (1) als Ionentauschermembran ausgeführt ist.
6. Tubulärer Verbund nach Anspruch 5, wobei zwischen dem Geflecht (3) aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials und der Schicht (5) eines Ionenleitenden Materials ein ionenleitfähiger oder neutraler Spacer (13) angeordnet ist.
7. Tubulärer Verbund nach einem der Ansprüche 5 und 6, wobei über der Schicht (5) eines Ionenleitenden Materials ein weiterer Spacer (15) angeordnet ist, der von einem weiteren Geflecht (17) aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials überdeckt ist.
8. Tubulärer Verbund nach einem der Ansprüche 5 bis 7, wobei der Spacer (13, 15) ein Geflecht aus elektrisch isolierenden oder Ionenleitenden Fasern umfaßt.
9. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Elektronenleitende Material ein Elektronenleitendes Stützgewebe, insbesondere eine Elektrode, ist.
10. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Bündel aus Kohlefasern aufgebaut sind, insbesondere mit einem Durchmesser des Bündels von 0,2 bis 2 mm.
11. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Drähte aus Metall sind oder dieses im wesentlichen enthalten.
12. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Metall ein korrosionsstabiles Metall oder eine korrosionsstabile Legierung ist.
13. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Kohlefasern und/oder Drähte einen Durchmesser von 10 bis 150 µm aufweisen,
14. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der tubuläre Verbund ein Schlauch mit einem Innendurchmesser von 0,2 bis 2 mm ist.
15. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Ionenleitende Material als Membran ausgeführt ist.
16. Tubulärer Verbund nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Ionenleitende Material aus der Gruppe der sulfonierten aromatischen Polyetheretherketone oder Nafion® oder anderer anionischer Polyarylether besteht.
17. Modul (50) aus einem Rahmen (52) und einer Vielzahl von in dem Rahmen (52) parallel und längs zu der Längsachse des Rahmens (52) angeordneten tubulären Verbünden (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 15.
18. Modul nach dem vorhergehenden Anspruch, wo-

- bei in dem Rahmen (52) tubuläre Verbünde enthalten sind, die elektrisch parallel geschaltet sind.
19. Modul nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die tubulären Verbünde (1) im Rahmen (52) in einer Matrix (54) angeordnet sind und die einzelnen Rahmen elektrisch in Reihe geschaltet sind.
20. Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung eines tubulären Verbundes, insbesondere nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei Bündel und/oder Drähte eines Elektronenleitenden Materials zu einem Schlauch aus einem Geflecht dieses Elektronenleitenden Materials geflochten werden und anschließend auf die dem Lumen des Schlauches abgewandte Außenseite des Geflechts ein Ionenleitendes Material aufgebracht und gegebenenfalls getrocknet wird.
21. Verfahren nach Anspruch 20 zur Herstellung eines als Brennstoffzelement ausgeführten tubulären Verbundes, wobei sowohl nach dem Flechten des Schlauches als auch nach dem Aufbringen des Ionenleitenden Materials jeweils mindestens eine Katalysatorschicht aufgebracht und gegebenenfalls getrocknet sowie anschließend auf die nach außen orientierte Katalysatorschicht ein weiteres Geflecht aus Bündeln und/oder Drähten eines Elektronenleitenden Materials aufgebracht wird, vorzugsweise durch Flechten von Kohlefaserbündeln und/oder Metalldrähten.
22. Verfahren nach Anspruch 20 zur Herstellung eines als Ionentauschermembran ausgeführten tubulären Verbundes, wobei Bündel und/oder Drähte eines Elektronenleitenden Materials zu einem Schlauch aus einem Geflecht dieses Elektronenleitenden Materials geflochten werden, anschließend ein Geflecht aus elektrisch isolierenden oder Ionenleitenden Fasern als Spacer, eine Zwischenschicht aus einem leicht auswaschbaren Material und auf diese eine Schicht eines Ionenleitenden Materials aufgebracht wird.
23. Verfahren nach Anspruch 22, wobei die Zwischenschicht aus einem leicht auswaschbaren Material eine PVA (Polyvinylalkohol)-Schicht ist.
24. Verfahren nach einem der Ansprüche 22 oder 23, wobei auf die Schicht des Ionenleitenden Materials ein weiteres Geflecht aus elektrisch isolierenden oder Ionenleitenden Fasern als Spacer und anschließend eine weitere Schicht eines Elektronenleitenden Materials aufgebracht wird.
25. Verfahren nach einem der Ansprüche 22 bis 24, wobei die Zwischenschicht aus einem leicht auswaschbaren Material nach Herstellung des tubulären Verbundes oder nach dem Zusammenfügen der Einzelhohlfasern zu einem Modul ausgewaschen wird.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

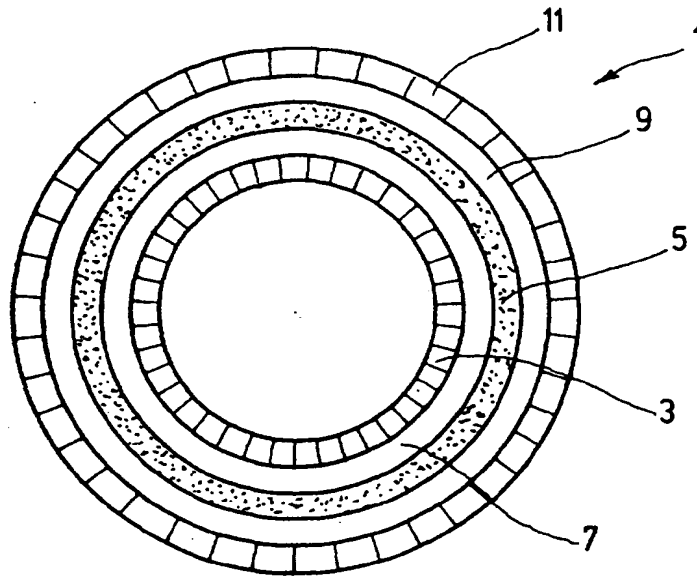


Fig. 1

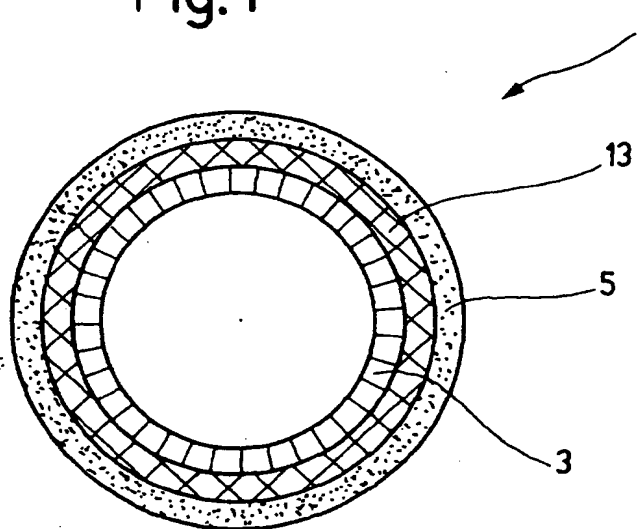


Fig. 2

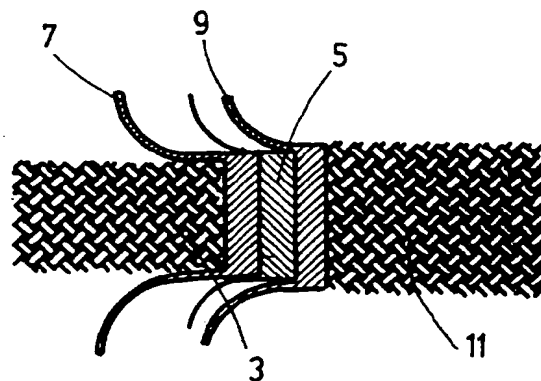


Fig. 6

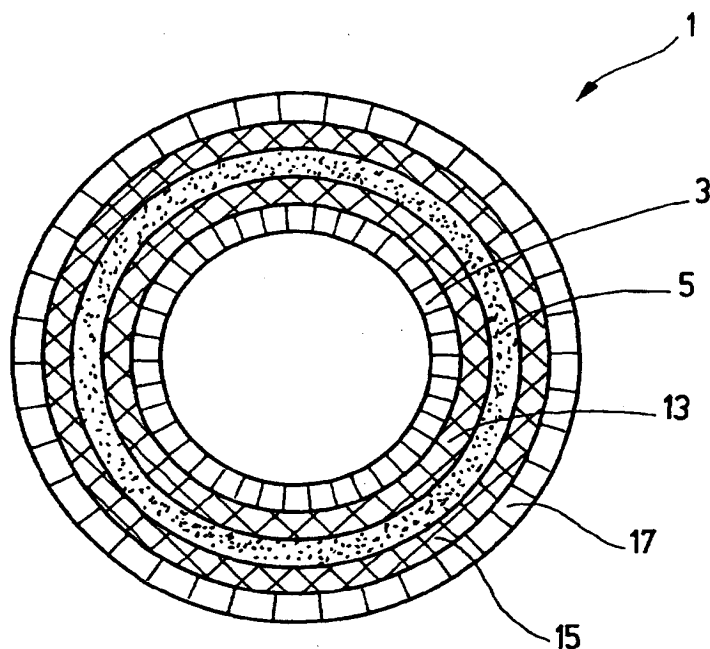


Fig. 3

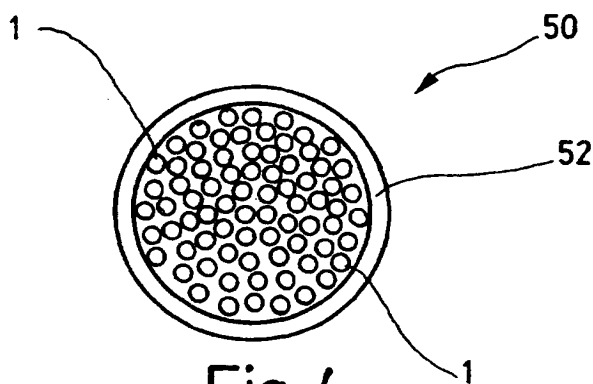


Fig. 4

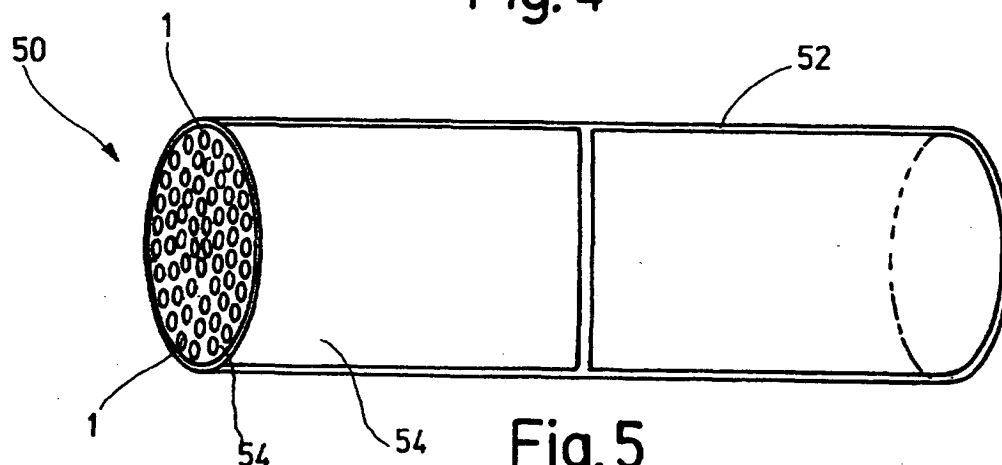


Fig. 5

WOOD BURNING

BEST AVAILABLE COPY